

(1) **Japanese Patent Application Laid-Open No. 2000-321224**

**“METHOD AND DEVICE FOR DYNAMICALLY OBSERVING
CHANGE IN CRYSTAL PARTICLE”**

5 The following is English translation of Abstract from the above-identified document relevant to the present application.

Abstract

10 **PROBLEM TO BE SOLVED:** The present invention is to provide a method for clearly observing dynamic changes in crystal particle and changes in micro texture that prevents problems such as oxidation or deformation of a sample surface while observing the sample at a high temperature in at least one state of heating, cooling, and isothermal maintenance states, and that allows the sample to be observed in bulk without making a thin film at about from 100-fold to 100,000-fold magnification that
15 is desirable for observing a micro organization.

SOLUTION: To provide a method for dynamically observing changes in crystal particle in at least one state of heating, cooling, and isothermal maintenance states, based on a secondary electron image or a reflection electron image from the sample where a focused ion beam is applied.

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号
特開2000-321224
(P2000-321224A)

(43) 公開日 平成12年11月24日 (2000.11.24)

(51) Int.Cl. ⁷	識別記号	F I	テ-マ-ト* (参考)
G 0 1 N 23/225		G 0 1 N 23/225	2 G 0 0 1
H 0 1 J 37/252		H 0 1 J 37/252	B 5 C 0 3 3

審査請求 未請求 請求項の数 4 O L (全 5 頁)

(21) 出願番号 特願平11-128619

(22) 出願日 平成11年5月10日 (1999.5.10)

(71) 出願人 000006655
新日本製鐵株式会社
東京都千代田区大手町2丁目6番3号
(72) 発明者 丸山 直紀
千葉県富津市新富20-1 新日本製鐵株式
会社技術開発本部内
(72) 発明者 杉山 昌章
千葉県富津市新富20-1 新日本製鐵株式
会社技術開発本部内
(74) 代理人 100077517
弁理士 石田 敬 (外2名)

最終頁に続く

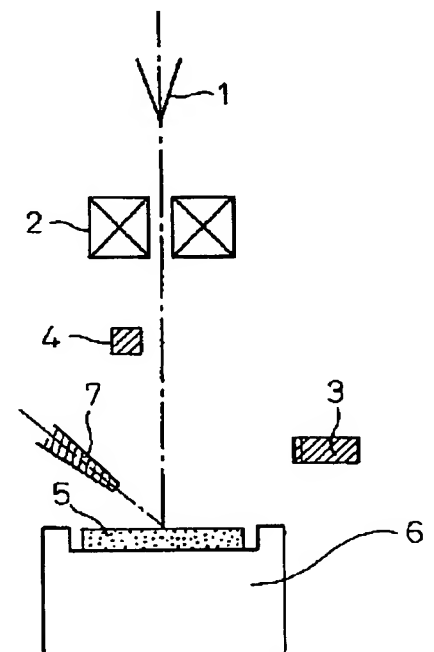
(54) 【発明の名称】 結晶粒変化の動的観察方法および装置

(57) 【要約】

【課題】 本発明は、加熱中、冷却中および等温保持中の少なくとも1つの状態中において、高温観察時に問題となる試料表面の酸化や形態変化を回避でき、さらに薄膜化せずバルクままの試料を観察でき、さらにマイクロ組織観察に好適な100倍程度から10万倍程度の観察倍率において結晶粒の動的変化やマイクロ組織の変化を鮮明に観察する方法を与える。

【解決手段】 集束イオンビームを照射された試料からの2次電子像あるいは反射電子像による、加熱中、冷却中及び等温保持中の少なくとも1つの状態中での結晶粒変化の動的観察方法を与える。

図 1



【特許請求の範囲】

【請求項 1】 集束イオンビームを照射された試料からの 2 次電子像あるいは反射電子像による、加熱中、冷却中及び等温保持中の少なくとも 1 つの状態中での結晶粒変化の動的観察方法。

【請求項 2】 各結晶粒の結晶方位をその場測定することを特徴とする、請求項 1 記載の結晶粒変化の動的観察方法。

【請求項 3】 集束イオンビームを照射する機能、および前記照射による試料からの 2 次電子及び反射電子の少なくとも 1 種の電子を検出する機能を備えたことを特徴とする電子線後方散乱パターン解析装置。

【請求項 4】 試料を加熱、冷却及び加工の少なくとも 1 つの機能を備えたことを特徴とする請求項 3 記載の装置。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】 本発明は、顕微鏡技術に関するもので、従来困難であった加熱中、冷却中あるいは高温での等温保持中の材料のミクロ組織の変化、特に結晶粒の変化およびその結晶粒の方位をその場観察する方法を与え、材料中で起こる相変態、再結晶、結晶粒成長等を動的に連続的に観察することを可能とするものである。

【0002】

【従来の技術】 材料の機械的性質や物理的性質は、材料中の結晶粒径や集合組織と極めて密接な関係があることが知られている。例えば、多結晶材料の強度や靱性は結晶粒の大きさに反比例して向上し、また電磁鋼板の磁気特性は磁区の大きさ（結晶粒の大きさ）や集合組織に依存して変化する。このため、結晶粒のサイズや方位の制御は材料設計上極めて重要であり、これらの制御指針を得るために様々な研究がなされてきている。定量的な制御指針を得るための最も直接的方法は、加熱中や冷却中に起こる相変態・再結晶等に伴う結晶粒の動きやミクロ組織の変化、さらにはその結晶方位をその場(in-situ)観察し、その挙動を把握することである。

【0003】 加熱中および冷却中における材料のミクロ組織変化をその場観察できうる手法および装置としては、特開平5-114377、特開平6-096709で開示されているように加熱機構を備えた試料ホルダを使用し電子顕微鏡で観察する装置が考案されている。しかしながら、これらの方法は電子顕微鏡の種類が走査型の場合、透過型の場合それぞれに対し以下の欠点を抱えていた。すなわち、走査型電子顕微鏡(SEM)の場合には、材料のミクロ組織を観察するのに好適な数百倍から数万倍の観察倍率が得られる利点がある一方で、結晶粒界の動きやミクロ組織の変化を「動的」に観察ができないという問題点があった。この原因は、(1) 高温において試料表面に酸化層や合金層が形成されるために酸化層・合金層直下のバ

ルク内部の情報が得られないためであり、(2) 1 次プローブ(入射ビーム)が電子線であるために平滑面内に存在する結晶粒のコントラストを視覚的に明瞭に判別することができないためである。

【0004】 また透過型電子顕微鏡(TEM)の場合には、SEM と異なり結晶粒界を明瞭に観察できる特徴がある一方で、観察可能な領域は表面積で高々 0.005mm^2 程度しかないという問題点があった。さらに、試料の膜厚は電子を透過させる必要上 $0.5\text{ }\mu\text{m}$ 以下に薄膜化する必要があり、このため実用材料の典型的な結晶粒径である数 μm から数 mm のオーダーの結晶粒の変化を観察できないという問題点もあった。

【0005】 (1) の課題を解決する方法としては、特開平7-92062 に開示されているように集束イオンビームで微細加工しながら TEM で観察する装置および方法が利用可能である。すなわち、加熱中に試料表面に生じる酸化層を集束イオンビームで削る方法が有効であると考えられる。しかしながら、上記発明方法は良質な TEM 薄膜を提供することを目的としており、粒界等のミクロ組織を観察することを目的とはしていない。さらにこの方法は加熱中、冷却中あるいは等温保持中のミクロ組織の動的変化を観察することを目的としておらず、TEM 法が本質的に抱える狭視野の問題や薄膜化効果の問題も解決することができていない。

【0006】 このように、(1) 加熱中、冷却中あるいは高温での等温保持中さらには高温での加工後において、(2) ミクロ組織観察に好適な 100 倍程度から 10 万倍程度の観察倍率で、(3) 高温観察時に問題となる試料表面の酸化を回避でき、(4) 結晶粒の動きやミクロ組織の動的変化を鮮明に観察でき、(5) 薄膜化せずバルクままの試料を観察できる方法の発明が望まれていた。

【0007】

【発明が解決しようとする課題】 本発明は上述した現状に鑑み開発されたもので、加熱中、冷却中あるいは高温での等温保持中、さらには高温での加工中あるいは加工後において、ミクロ組織観察に好適な 100 倍程度から 10 万倍程度の観察倍率で、高温観察時に問題となる試料表面の酸化を回避でき、結晶粒の動きやミクロ組織の動的変化を鮮明に観察でき、薄膜ではなくバルク形状の試料を観察できる方法を提供することを目的としたものである。

【0008】

【課題を解決するための手段】 本発明は、前記課題を解決するために次の手段を講じた。すなわち、本発明の第一の特徴は、集束イオンビームを試料に照射した際に発生する 2 次電子像あるいは反射電子像により、加熱中、冷却中及び等温保持中の少なくとも 1 つの状態中での結晶粒変化を動的観察する方法である。

【0009】 第二の特徴は、各結晶粒の結晶方位をその場測定することを特徴とする、請求項 1 記載の結晶粒変

化を動的観察する方法である。高温とは、試料中の結晶粒の動き（変化）が観察されうる温度を指し、試料種により異なる。例えば、鉄系材料ならば300℃以上を指し、アルミニウム材料ならば100℃以上を指す。

【0010】各結晶粒の結晶方位の測定には、試料に集束した電子線を当て、そこから発生する電子線後方散乱パターン(Electron Back Scattering Pattern;EBSP)を検出し、パターン解析する方法が好適であり、集束イオンビームを照射する機能、および前記照射による試料からの2次電子及び反射電子の少なくとも1種の電子を検出する機能を備えた電子線後方散乱パターン解析装置を用いる。また、試料の温度を変化させるためには試料ホルダーに加熱、冷却機構を内蔵させておくか、冷却用のガスを試料表面に噴射させる機構を採用する。更に、本発明方法の派生形態として、試料ステージに引張あるいは圧縮機構を付属的に設けることにより、高温変形中あるいは高温変形直後の結晶粒界の動きあるいはミクロ組織の変化の観察が可能となる。

【0011】

【発明の実施の形態】上記構成によると、試料表面に生じた酸化層を集束したイオンビームで連続的にスパッタリングできるために、高温においても常にバルク表面の新生面を観察することができる。さらにその集束イオンビームを2次電子あるいは反射電子を発生させるための1次プローブ（入射ビーム）として同時に用いるので、電子線を1次プローブとして用いた場合と異なり、イオンのチャネリング効果によりバルク試料でも結晶粒界を明瞭に観察することができる。また試料を薄膜化せずバルクままで、しかも広い領域を観察できることから、真のバルク中の結晶粒の動きあるいはミクロ組織の変化を観察することができる。また本発明では、電子線の発生・集束装置とEBSPの検出機構からなる電子線後方散乱パターン解析装置に、集束イオンビームを照射する機能、および前記照射による試料からの2次電子あるいは反射電子を検出する機能を組み込むことにより、結晶粒の動的観察と同時に、観察している結晶粒の方位解析をすることも可能である。観察可能な倍率はミクロ組織観察に好適な100倍程度から10万倍程度まで可能である。

【0012】

【実施例】以下に本発明の実施例を説明する。発明者らはまず第一に、Gaをイオン源として用いる集束イオンビーム(FIB)加工装置にSEM用およびTEM用の試料加熱冷却ホルダーを装着することにより、結晶粒の動的観察を試みた。図1にその概略図を示す。

【0013】Gaイオン源1から加速されたイオンは、集束の後、偏向コイル2により試料上で走査される。このイオンビームにより試料表面をスパッタリングすると同時に、イオンが試料に当たることにより発生した2次電子を2次電子検出器3で、反射電子を反射電子検出器4により検出する。試料観察プローブとして用いる集束イ

オンビームのビーム種としては、FIB加工装置として既に実用化がなされているGaの他に、低融点金属であるAs、Bi、Cs、Ga、In、Li、Mg、Sb、Sn、Znが使用可能である。

【0014】試料5は加熱冷却ホルダー6により固定される。加熱冷却ホルダー6において、試料は試料下部に置かれたタングステンフィラメントにより間接的に加熱され、試料の周囲に配置された水冷管により間接的に冷却される。このような間接的な試料加熱方法では、1500℃までの加熱が可能であるが、さらに高温の加熱を行うためには直接試料に通電する方法が好ましい。

【0015】試料の冷却方法としては、本実施例のように(1)試料周囲に冷却管を張り巡らせ間接的に冷却する方法の他に、(2)通電する電流を減少させる方法が、(3)試料に窒素、アルゴン、ヘリウム等のガスを直接噴射し冷却する方法が有効である。通常は(1)か(2)の方法で十分であるが、特に10℃/s以上の冷却速度における結晶粒の動き（あるいはミクロ組織の変化）を観察する場合には、(3)単独あるいは(2)と(3)の併用方法が好適である。7は試料冷却に用いるガスの噴射機構であり、窒素、アルゴン、ヘリウム等の不活性ガスを直接試料上に噴射して試料を冷却する機構である。

【0016】2次電子検出器3は、試料上部に位置させる。ただしその場合、試料昇温により起こる試料からの直射光により1000℃以上では像質が低下する。このため1000℃以上での観察を行うためには、試料からの直射光が当たらない位置に検出器を置き、試料から発生した2次電子を電場勾配により曲折させ、検出器3で捕捉する方法が望ましい。

【0017】以上の機構において、高温での急激な試料酸化を防ぐために、試料は真空雰囲気内におかれる。真空度が良いほど、試料の観察上は好ましい。さらに発明者らは、各結晶粒の方位解析を行うために、EBSP(電子線後方散乱パターン)解析装置の電子線源および検出機構を、前述のFIB装置に組み入れた。本発明方法によると、高温での後方散乱電子の菊池パターンが明瞭に観察できており、高温で動的に変化する結晶粒の組織観察だけでなく、その結晶粒の方位も解析可能である。

【0018】以上の装置を用い、多結晶鉄を試料として用いたところ、加熱速度100℃/sec以下、冷却速度50℃/sec以下の範囲内で、図1に示した装置により α - γ 相変態(加熱中)、結晶粒成長(加熱中および等温保持中)、 γ - α 相変態(冷却中)挙動がその場(in-situ)で観察できることが確認された。図2(a)及び(b)は結晶粒変化の動的観察結果の一例であり、1000℃における鉄の結晶粒の時間変化を観察した例である。

【0019】

【発明の効果】本発明は従来観察不可能であった結晶粒成長、動的再結晶、静的再結晶、加熱中の相変態、等温相変態、冷却中の相変態の動的観察手段を与え、上記現

象解明に大きく貢献しうる。1500℃以下で内部組織の変化が起こる鉄鋼材料、アルミニウム材料、チタン材料、銅材料を代表とする金属材料の組織観察方法として利用可能であり、これら材料研究開発を進展させる効果を有する。

【図面の簡単な説明】

【図1】本発明の一実施例であるイオンの集束機構と加熱冷却機構を有する試料ステージからなる装置の概略図である。

【図2】多結晶鉄の1000℃でのミクロ組織の時間変化を

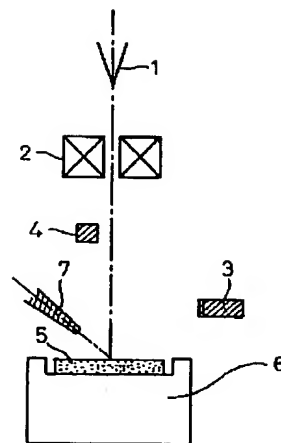
観察した例であり、図2(a)は0分及び図2(b)は30分保持した金属組織の写真である。

【符号の説明】

- 1…Gaイオン源（含イオン加速機構）
- 2…イオンビームの集束および偏向機構
- 3…2次電子検出器
- 4…反射電子検出器
- 5…試料
- 6…試料加熱冷却ホルダー
- 7…ガス噴射口

【図1】

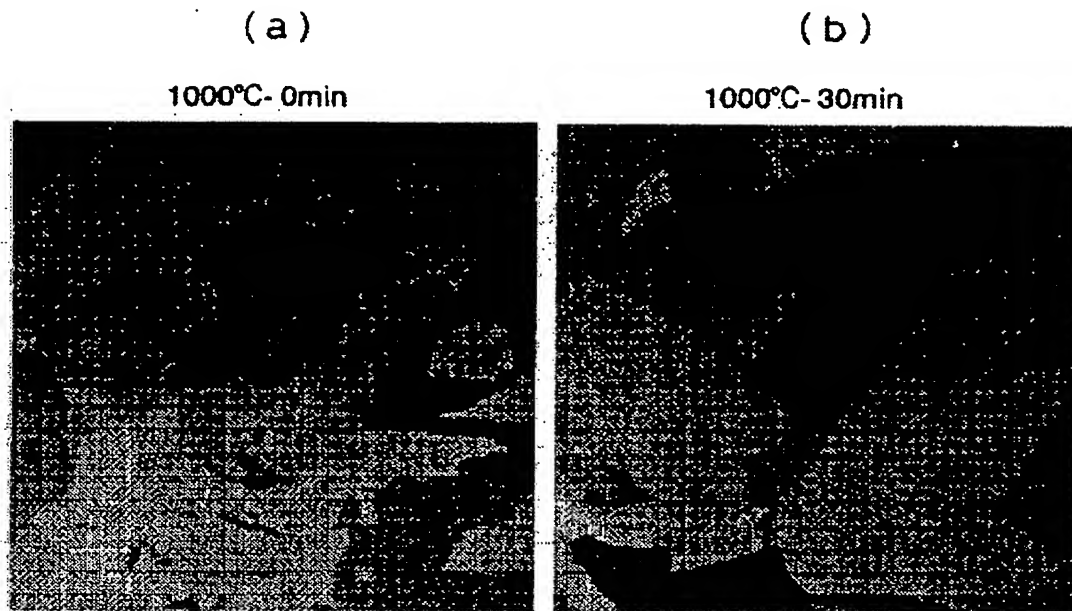
図 1



【図 2】



2



フロントページの続き

Fターム(参考) 2G001 AA03 AA05 BA07 BA15 CA03
DA02 DA06 GA06 GA17 JA01
JA14 KA08 KA20 LA02 PA07
QA01 RA03 RA20
5C033 QQ05 QQ10 UU03 UU06